

DEU/EP200 4 / 0 0 3 4 5 1
BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

01 APR 2004

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 26 APR 2004

WIPO PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 103 16 521.5
Anmeldetag: 10. April 2003
Anmelder/Inhaber: Wacker-Chemie GmbH,
München/DE
Bezeichnung: Laminatglas mit Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer
IPC: C 03 C, C 08 G, B 32 B

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 09. Januar 2004
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Hof

Laminatglas mit Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer

Die Erfindung betrifft Laminatglas mit mindestens einer Schicht aus anorganischem oder organischem Glas und mindestens einer Schicht aus Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer und dessen Herstellung.

Laminatglas, auch Verbundglas genannt, ist seit langer Zeit im Einsatz. Es ist sandwichartig aufgebaut und besteht aus mindestens einer Glastafel und einer darauf befindlichen polymeren Schicht. Das Laminatglas hat gegenüber normalem Glas verschiedene Vorteile. Bei einem Bruch durch Gewalteinwirkung bindet die polymere Schicht die Splitter, so dass die Verletzungsgefahr wesentlich geringer ist als bei normalem Glas.

Der Vorteil gegenüber Einscheibensicherheitsglas liegt darin, dass die Laminatglasscheibe nach einem Bruch auch weiterhin durchsichtig ist. Laminatglas erschwert auch das Durchdringen der Scheibenkonstruktion durch Gewalteinwirkung, wie Einbruch mit Werkzeugen, Projektilen, oder bei Wirbelstürmen umherfliegende Gegenstände wie z.B. größere Holzsplittter. Außerdem kann durch den schichtweisen Aufbau eine zusätzliche Schall- und Wärmedämmung erreicht werden. Der Einsatzbereich der Verbundgläser umfasst den Automobil- und Fahrzeugbau, den Flugzeugbau sowie die Bauindustrie.

Die polymeren Zwischenschichten müssen eine Kombination von Eigenschaften aufweisen wie zum Beispiel geringe oder keine Trübung, hohe Festigkeit, sehr gute UV-Stabilität, sehr gute Haftung auf Glas und geringe Feuchtigkeitsaufnahme bei sehr großer Feuchtigkeitsbeständigkeit.

Am häufigsten wird als polymere Zwischenschicht weichgemachtes Polyvinylbutyral (PVB) in Folienform verwendet. Diese Technologie wird seit über 70 Jahren erfolgreich eingesetzt und wurde ständig weiterentwickelt und verfeinert, sowohl hinsichtlich der Polymerfolien als auch hinsichtlich der Verarbeitungstechnologien.

Das Polyvinylbutyral, bestehend aus dem eigentlichen PVB-Harz selbst mit einem relativ hohen Gehalt an freien OH-Gruppen und einem Weichmacher, wird in der Regel als 0,76 mm dicke Folie eingesetzt, die durch Erhitzen und Verpressen im Vakuum mit den Glasscheiben in Verbindung gebracht wird. Das PVB reagiert sehr sensibel auf Temperatur- und Luftfeuchtigkeitsveränderungen. Um das Verkleben der PVB-Folien untereinander zu verhindern, müssen z.B. die Folienrollen vor dem Gebrauch bei niedrigen Temperaturen gelagert werden. Diese Feuchtigkeitsempfindlichkeit kann zu einer verstärkten Trübung der Polymerfilme und schließlich auch zu Blasenbildung in den Laminatgläsern führen. Insbesondere tritt dieser Effekt an den Rändern der Laminatgläser auf. Während der Herstellung der Laminatgläser lassen sich diese Effekte zwar durch entsprechende Klimatisierung und Konditionierung der PVB-Folien vermeiden, allerdings kann beim Einsatz der Laminatgläser im Laufe der Zeit dieser Effekt trotzdem z.B. durch an den Kanten eintretende Feuchtigkeit hervorgerufen werden. Dieses Phänomen der Delamination durch Eindringen von Feuchtigkeit und Chemikalien ist schon vor der Einführung von PVB als polymere Zwischenschicht festgestellt worden, und es wurde versucht, das Problem durch eine verbesserte Konstruktion zu beseitigen. Oft wird auch nur durch das Aufbringen von Beschichtungen an den Randzonen das Problem zumindest optisch beseitigt. Damit wird zwar eine ästhetische Beeinträchtigung vermieden, das eigentliche Problem der Delamination aber nicht beseitigt. Ein weiterer Nachteil der PVB-Folien ist deren Gehalt an Weichmacher. Dieser Weichmacher kann im Laufe der Zeit herauswandern, was zur Veränderung der mechanischen Eigenschaften der PVB-Folie führen kann, d.h. die Folie wird spröde und brüchig. Das Laminatglas verliert an diesen Stellen seine Sicherheitswirkung. Außerdem kann das Auswandern von Weichmacher ebenfalls zu Delaminationerscheinungen, beginnend an den Kanten der Laminatgläser, führen.

Die Kanten der mit PVB-Folien hergestellten Laminatgläser sind außerdem empfindlich auf Chemikalien, die zum Beispiel aus Dichtmassen auswandern können. Dichtmassen werden aber häufig

benötigt, um das Laminatglas mit einer Rahmenkonstruktion dauerhaft zu verbinden. Es kann wiederum zu Delamination kommen.

Ein sehr gravierender Nachteil der Laminatgläser aus PVB-Folien resultiert aus der relativ hohen Glasübergangstemperatur T_g des PVB, die im Falle der weichmacherhaltigen Typen bei ca. 16°C liegt. Bei Temperaturen deutlich unterhalb oder deutlich oberhalb der Glasübergangstemperatur kann das Laminatglas seine guten Sicherheitseigenschaften verlieren.

10

Alternative Vorschläge für die polymere Zwischenschicht, nämlich Polyurethane, Polyharnstoffe, Epoxide, Polyester, (Meth)-Acrylate, Silicone, Siliconharzpolymere, MS-Polymeren (modified silicone polymeres, Hotmelt-Klebstoffe, Beschichtungen und Dichtungsmassen, Plastisole, Polyethylen, und Polyvinylacetat sind beispielsweise in WO 99/62707 beschrieben.

In DE 1596960 sind Sicherheitsverbundglasgegenstände beschrieben, bei denen die Zwischenschicht aus einem siliciumhaltigen Polyurethan besteht. Diese siliciumhaltigen Polyurethane enthalten Umsetzungsprodukte aus Polyolen mit Siliconverbindungen, die Silanol- oder Alkoxy silangruppen enthalten. Dabei bilden sich Verbindungen, die Si-O-C-Verknüpfungen enthalten, welche bekanntermaßen nicht hydrolysestabil sind. Im Laufe des Gebrauchs würden deshalb Laminatgläser mit solchen Polymeren von den Rändern her ihre Eigenschaften einbüßen, da eine allmähliche Zerstörung der Polymere eintritt. Die Funktion des Laminatglases ist damit in diesen Zonen nicht mehr gegeben. Die Polyurethane von DE 1596960 können auch siliciumhaltige Verbindungen mit Si-CH₂-OH-Gruppen enthalten. Solche Verbindungen sind allerdings nur sehr schwer zugänglich und somit teuer in der Herstellung. Des weiteren wird ausgeführt, dass Aminogruppen über Aminoalkohole eingeführt werden können, welche allerdings zu Produkten führt, die ebenfalls nicht hydrolysestabil sind und außerdem noch zum Verfärben neigen.

In US 6156417 werden Polyurethane beschrieben, die auch durch Siloxane modifiziert werden können. Neben einer bloßen Zumischung von Siloxanen wird beschrieben, dass die Produkte durch Umsetzung von Siloxanolen mit Isocyanaten erhalten werden können, wodurch Silylurethane entstehen, die ebenfalls nicht hydrolysestabil sind.

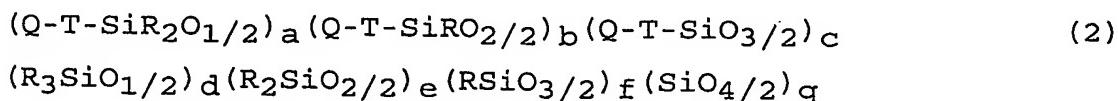
Darüber hinaus sind die mechanischen Festigkeiten, die sich mit siloxanhaltigen Polyurethanen erreichen lassen, für den Einsatz zweck im Laminatglas nicht ausreichend. Daran ändert sich auch nichts, wenn man die funktionellen Gruppen über Si-C-Bindungen an das Silicongerüst bindet.

- 15 Gegenstand der Erfindung ist ein Laminatglas, welches umfasst
 (A) mindestens eine Schicht aus anorganischem oder organischem Glas und
 (B) mindestens eine Schicht aus einem Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer, das erhältlich ist durch Umsetzung einer Mischung
 20 von
 a1) linearen Polysiloxanen der allgemeinen Formel (1)



und

- a2) verzweigten Polysiloxanen der allgemeinen Formel (2)



30

wobei

Q NH-R¹ oder OH,

T einen zweiwertigen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, in dem einander nicht benachbarte

35 Methyleneneinheiten durch Gruppen NR⁶ oder O ersetzt sein können und

R einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder -CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen ,

R¹ Wasserstoff oder einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder -CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen,

R⁶ ein Wasserstoffatom oder einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor oder -CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,

n den Wert 0 oder ganzzahlige Werte von 1 bis 1000 und a, b, c, d, e, f und g den Wert 0 oder ganzzahlige Werte bedeuten,

mit der Maßgabe, dass die Summe aus b+c+f+g mindestens 1 beträgt, dass die Summe aus a+b+c mindestens 2 beträgt und für Q

das Verhältnis der Bedeutungen NH-R¹ : OH so gewählt wird, dass das Verhältnis der Harnstoffgruppen und Urethangruppen im Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) mindestens 4 : 1 beträgt, mit

b) polyfunktionellen Isocyanaten.

Die Polysiloxan-Harnstoff-Copolymeren (B), die durch Umsetzung von Mischungen aus linearen aminofunktionellen Polysiloxanen (a1) und verzweigten aminofunktionellen Polysiloxanen (a2) mit polyfunktionellen Isocyanaten (b) mit mindestens zwei NCO-

Gruppen erhältlich sind, erreichen dann entsprechende Festigkeiten, wie sie durch die PVB-Folien erreicht werden, wenn das Verhältnis von Harnstoffgruppen zu Urethangruppen mindesten 4:1 beträgt.

Durch die Kombination der linearen aminofunktionellen Polysiloxane (a1) und verzweigten aminofunktionellen Polysiloxane (a2) mit den polyfunktionellen Isocyanaten (b) lassen sich alle erwünschten Eigenschaften kombinieren wie hohe Festigkeit der Polymere (B) bei ausreichender Elastizität und niedriger Glasübergangstemperatur T_g, wobei sich die Eigenschaften über eine weiten Temperaturbereich nur wenig

ändern. Die so hergestellten Polymere (B) neigen außerdem nicht zu Verfärbungen.

Vorzugsweise bedeutet T einen zweiwertigen geradkettigen oder

5 verzweigten Alkyl-, Aryl- oder Aralkyl-Rest, der vorzugsweise geradkettig ist. Vorzugsweise weist T Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatome auf. Insbesondere bedeutet T Methylen oder Propylen.

10 Die Kohlenwasserstoffreste R, R¹ können linear, verzweigt oder cyclisch aliphatisch, aromatisch oder gemischt aliphatisch-aromatisch sein. Vorzugsweise bedeuten R und R¹ einen einwertigen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und den Phenylrest, insbesondere sind sie nicht substituiert. Besonders 15 bevorzugte Reste R und R¹ sind Methyl, Ethyl, Vinyl und Phenyl, insbesondere Methyl.

Vorzugsweise bedeutet R⁶ ein Wasserstoffatom oder einen Methyl-, Ethyl-, Propyl- oder Butylrest.

20 Vorzugsweise bedeutet n Werte von 10 bis 200, besonders bevorzugt sind Werte von 10 bis 50.

25 Das lineare Polysiloxan (a1) der allgemeinen Formel (1) ist im wesentlichen linear. Das bedeutet, dass T-Einheiten ($\text{RSiO}_{3/2}$) nicht völlig ausgeschlossen sind, aber nur im Rahmen der durch die Technologie bedingten Verunreinigungen vorhanden sein sollen. Auf 1000 D-Einheiten (SiR_2O) kommen vorzugsweise höchstens 5 T-Einheiten, insbesondere höchstens 1 T-Einheit.

30 Im verzweigten Polysiloxan (a2) der allgemeinen Formel (2) beträgt die Summe aus a+b+c vorzugsweise 3 bis 40 insbesondere 3 bis 10 und die Summe aus d+e+f+g vorzugsweise 0 bis 160, insbesondere 0 bis 40.

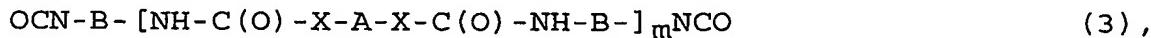
Im verzweigten Polysiloxan (a2) beträgt die Summe aus $a+b+c+d+e+f+g$ vorzugsweise Werte von 3 bis 200, besonders bevorzugt sind Werte von 3 bis 50.

5

Bevorzugt sind aminofunktionelle Polysiloxanen (a2), bei denen $b=c=e=f=0$ (QMM^A-Harz) oder $a=c=f=g=0$ (Aminöl mit seitenständigen Aminogruppen).

- 10 Vorzugsweise beträgt das Gewichtsverhältnis von linearen aminofunktionellen Polysiloxanen (a1) zu verzweigten aminofunktionellen Polysiloxanen (a2) 50 : 50 bis 95 : 5, insbesondere 65 : 35 bis 90 : 10.
- 15 Vorzugsweise beträgt das Verhältnis der Harnstoffgruppen und Urethangruppen im Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) mindestens 10 : 1, besonders bevorzugt 50 : 1, insbesondere sind nur Harnstoffgruppen vorhanden.
- 20 Die polyfunktionellen Isocyanate (b) weisen mindestens 2 und vorzugsweise höchstens 4 Isocyanatgruppen auf. Bevorzugt sind organische Diisocyanate und Präpolymere, insbesondere lineare Präpolymere mit jeweils 2 Isocyanatgruppen und deren Mischungen.

Bevorzugt sind Diisocyanate bzw. Präpolymere der allgemeinen Formel (3)



- 30 in der
 - A einen zweiwertigen gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder -CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 5000 Kohlenstoffatomen, der durch Gruppen unterbrochen sein kann, die ausgewählt werden aus -O- und -O-CO-O-,

B einen zweiwertigen gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder - CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 100 Kohlenstoffatomen,

X N-R¹ oder O und

5 m den Wert 0 oder 1 bis 10 bedeuten,
mit der Maßgabe, dass wenn m>0, für X das Verhältnis der Bedeutungen N-R¹ : O so gewählt wird, dass das Verhältnis der Harnstoffgruppen und Urethangruppen im Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) mindestens 4:1 beträgt.

10

Besonders bevorzugt ist m = 0.

Bevorzugte polyfunktionelle Isocyanate sind Diisocyanate wie zum Beispiel 4,4'-Methylenbis(phenylisocyanat)MDI, 2,4- und 2,6-15 Toluoldiisocyanat TDI, Hexamethylendiisocyanat HMDI und Isophorondiisocyanat IPDI. Besonders bevorzugt sind aliphatische Isocyanate.

20 Die Präpolymere werden hergestellt, indem die oben erwähnten Isocyanate mit einem Unterschluß an Polyolen umgesetzt werden
Bevorzugte Polyetherkomponenten für die Präpolymere sind Polyethylenglycole, Polypropylenglycole, Polyethylenpropylenglycole und Polyesterpolyole.

25 Zur Verbesserung der Haftung können dem Polysiloxan-Harnstoff-Copolymeren (B) haftvermittelnde Silane zugegeben werden.
Beispiele für Haftvermittler sind Silane mit hydrolysierbaren Gruppen und SiC-gebundenen Vinyl-, Acryloxy-, Methacryloxy-, Isocyanato-, Epoxy-, Säureanhydrid-, Säure-, Ester- oder 30 Ethergruppen sowie deren Teil- und Mischhydrolysat.

Beispiele für Haftvermittler sind 3-Isocyanatopropyltrimethoxysilan, 3-Isocyanatopropyltriethoxysilan, 3-Isocyanatopropyldimethoxymethylsilan, 3-Isocyanatopropyldiethoxymethylsilan, 3-Isocyanatopropylmethoxydimethylsilan, 3-Isocyanatopropylethoxydimethylsilan, Isocyanatomethyltrimeth-

oxysilan, Isocyanatomethyltriethoxysilan, Isocyanatomethyldimethoxymethylsilan, Isocyanatomethyldiethoxymethylsilan, Isocyanatomethylmethoxydimethylsilan und Isocyanatomethylethoxydimethylsilan, 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 3-Aminopropyltriethoxysilan, 3-(2-Aminoethyl)aminopropyltrimethoxysilan, 3-(2-Aminoethyl)aminopropyltriethoxysilan, 3-Aminopropylmethyldimethoxysilan, 3-(2-Aminoethyl)aminopropylmethyldimethoxysilan, Cyclohexylaminomethyltriethoxysilan, Glycidoxypolypropyltrimethoxysilan, Glycidoxypolypropyltriethoxysilan.

10

Silane mit Vinylgruppen und Silane mit Epoxygruppen, die als hydrolysierbare Reste Ethoxy- oder Acetoxygruppen enthalten, sind bevorzugt. Glycidoxypolypropyltriethoxysilan, Vinyltriethoxysilan und Vinyltriacetoxysilan, bzw. deren Teile und Mischhydrolysate sind besonders bevorzugt.

15

Die Haftvermittler werden in Mengen von 0,01% bis 5%, bevorzugt 0,1% bis 2%, besonders bevorzugt zwischen 0,4% und 0,7%, jeweils bezogen auf die Gesamtmasse an Copolymer (B) zugegeben.

20

Die haftvermittelnden Silane, bzw. deren Lösungen und Hydrolyse-Kondensationsprodukte, können auch auf die Oberfläche der aus den Polysiloxan-Harnstoff-Copolymeren (B) hergestellten Folien aufgebracht werden.

In einem bevorzugten Verfahren zur Herstellung des Laminatglases wird das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) in einem ersten Schritt durch Umsetzung einer Mischung von linearen Polysiloxanen (a1) und verzweigten Polysiloxanen (a2) und

30 Polyisocyanaten (b) hergestellt und das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) in einem zweiten Schritt auf mindestens eine Schicht aus anorganischem oder organischem Glas (A) aufgebracht.

Die Herstellung des Polysiloxan-Harnstoff-Copolymeren (B) kann entweder in einem geeigneten Lösungsmittel oder auch ohne Lösungsmittel erfolgen. Haftvermittelnde Silane können im ersten Schritt vor oder während der Umsetzung zugesetzt werden.

35

Die Polysiloxan-Copolymere (B) haben thermoplastische und elastische Eigenschaften, d.h. unterhalb der Schmelz- bzw. Erweichungstemperatur sind sie gummielastisch, oberhalb dieser Temperatur viskose Flüssigkeiten.

5

Die Umsetzung der verschiedenen Komponenten kann entweder in einem geeigneten Lösungsmittel oder auch ohne Lösungsmittel in einem Extruder erfolgen. Bevorzugt ist die Umsetzung in einem Extruder, wobei die einzelnen Komponenten nacheinander in geeigneter Reihenfolge zugegeben werden, gegebenenfalls jeweils nach einer vom Fachmann zu bestimmenden Verweilzeit. Am Ende des Extruders kann das fertige Produkt zum Beispiel als Granulat abgenommen werden, oder auch gleich als Folie mit der gewünschten Dicke. Letzteres ist besonders bevorzugt.

15

Das Laminatglas ist sandwichartig aufgebaut und besteht aus mindestens einer Glasschicht (A) und einer darauf befindlichen Schicht aus Polysiloxan-Copolymer (B), in der Regel aber aus mindestens zwei Glasschichten (A) und einer Zwischenschicht (B), die die Glasschichten (A) miteinander verbindet. Die Glasschichten (A) können entweder aus anorganischen Gläsern, wie zum Beispiel Floatglas und/oder aus organischen Gläsern, wie Polycarbonat- (PC) oder Polymethylmethacrylatglas (PMMA) bestehen. Auf eine Glasschicht (A) folgt stets eine Schicht aus Polysiloxan-Copolymer (B). Die Schicht aus Polysiloxan-Copolymer (B) kann aus einem einheitlichen Material bestehen, oder auch selbst mehrschichtig aus verschiedenen Schichten aus Polysiloxan-Copolymer (B) aufgebaut sein.

Der Verbund zwischen Glas (A) und Polysiloxan-Copolymer (B) kann in verschiedener Art und Weise erhalten werden. Eine einfache Art ist zum Beispiel der Schicht aus Polysiloxan-Copolymer (B) als Folie. Diese Folie wird zwischen die beiden Glasplatten (A) gelegt und durch Erhitzen bis mindestens zu einer Temperatur, bei der diese Folie zu erweichen beginnt und bei gleichzeitigem Pressen der Verbund hergestellt. Eine weitere Möglichkeit zur Herstellung des Laminatglases besteht darin, dass auf eine der Glasscheiben (A) verflüssigtes

Polysiloxan-Copolymer (B) durch beispielsweise Rakel, Walzen oder auch Siebdruck aufgebracht wird. Das Laminatglas wird dann schließlich erhalten, indem die zweite Glasplatte (A) auf die Schicht aus Polysiloxan-Copolymer (B) gelegt wird und wiederum durch Temperaturerhöhung und Pressen der Verbund erhalten wird. Auch hierbei kann eine Vorbehandlung der Glasscheiben (A), wie bereits beschrieben, erfolgen.

Eine dritte Möglichkeit besteht darin, dass die beiden gegebenenfalls wiederum mit Haftvermittler behandelten Glastafeln (A) durch geeignete Abstandshalter so zusammengesetzt werden, dass ein Spalt von definierter Breite erhalten wird. In diesen Spalt wird nun verflüssigtes Polysiloxan-Copolymer (B) aus einem geeigneten beheizten Vorratsgefäß durch eine Dosiereinrichtung eingebracht, wobei die Kanten der Glastafeln so verschlossen sind, dass die Polymerschmelze nicht an unerwünschten Stellen austritt und nur die zwischen den Glastafeln befindliche Luft entweichen kann.

Zur Herstellung des Laminatglases wird das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) bevorzugt als Folie eingesetzt.

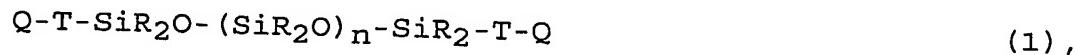
Vorzugsweise werden haftvermittelnde Silane nach dem ersten Schritt auf das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) oder das anorganische oder organische Glas (A) oder sowohl auf das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) und das anorganische oder organische Glas (A) aufgebracht.

Das Aufbringen der haftvermittelnde Silane kann in bekannter Art und Weise vor dem Herstellen des Verbundes auf die Folie und/oder die Gläser erfolgen. Es kann eine Lösung von Haftvermittlern in einem geeigneten Lösungsmittel eingesetzt werden. Für dieses Verfahren hat sich der Begriff Primern eingebürgert.

Patentansprüche :

1. Laminatglas, welches umfasst
 (A) mindestens eine Schicht aus anorganischem oder
 5 organischem Glas und
 (B) mindestens eine Schicht aus einem Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer, das erhältlich ist durch Umsetzung einer Mischung von
 a1) linearen Polysiloxanen der allgemeinen Formel (1)

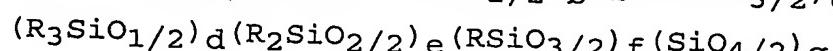
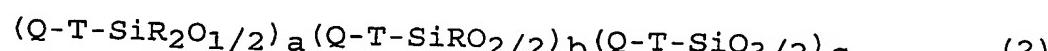
10



und

- a2) verzweigten Polysiloxanen der allgemeinen Formel (2)

15



wobei

- 20 Q NH-R¹ oder OH,
 T einen zweiwertigen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, in dem einander nicht benachbarte Methyleneneinheiten durch Gruppen NR⁶ oder O ersetzt sein können und
 25 R einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder -CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen ,
 R¹ Wasserstoff oder einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder -CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen,
 30 R⁶ ein Wasserstoffatom oder einen einwertigen, gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor oder -CN substituierten Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,
 n den Wert 0 oder ganzzahlige Werte von 1 bis 1000 und

a, b, c, d, e, f und g den Wert 0 oder ganzzahlige Werte bedeuten,
mit der Maßgabe, dass die Summe aus b+c+f+g mindestens 1 beträgt, dass die Summe aus a+b+c mindestens 2 beträgt und
für Q das Verhältnis der Bedeutungen NH-R¹ : OH so gewählt wird, dass das Verhältnis der Harnstoffgruppen und Urethangruppen im Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) mindestens 4 : 1 beträgt, mit
b) polyfunktionellen Isocyanaten.

- 10 2. Laminatglas nach Anspruch 1, bei dem T Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen ist.
- 15 3. Laminatglas nach Anspruch 1 oder 2, bei dem R einen einwertigen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Phenylrest bedeutet.
- 20 4. Laminatglas nach Anspruch 1 bis 3, bei dem das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymere (B) haftvermittelnde Silane enthält.
- 25 5. Verfahren zur Herstellung des Laminatglases gemäß Anspruch 1 bis 4, bei dem das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) in einem ersten Schritt durch Umsetzung einer Mischung von linearen Polysiloxanen (a1) und verzweigten Polysiloxanen (a2) und Polyisocyanaten (b) hergestellt wird und das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) in einem zweiten Schritt auf mindestens eine Schicht aus anorganischem oder organischem Glas (A) aufgebracht wird.
- 30 6. Verfahren nach Anspruch 5, bei dem haftvermittelnde Silane im ersten Schritt zu dem Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) gegeben werden.
- 35 7. Verfahren nach Anspruch 5, bei dem haftvermittelnde Silane nach dem ersten Schritt auf das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) oder das anorganische oder organische Glas (A)

oder sowohl auf das Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) und das anorganische oder organische Glas (A) aufgebracht werden.

8. Verfahren nach Anspruch 5 oder 6, bei dem die Umsetzung im ersten Schritt in einem Extruder erfolgt und das gebildete Polysiloxan-Harnstoff-Copolymer (B) anschließend direkt als Folie extrudiert wird.

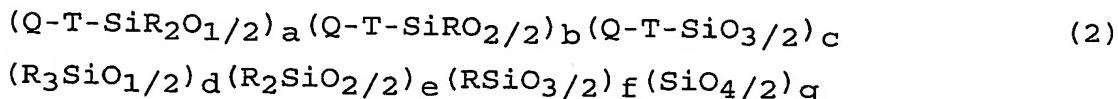
Laminatglas mit Polysiloxan-Copolymer**Zusammenfassung**

- 5 Gegenstand der Erfindung ist ein Laminatglas, welches umfasst
(A) mindestens eine Schicht aus anorganischem oder organischem
Glas und
(B) mindestens eine Schicht aus einem Polysiloxan-Harnstoff-
Copolymer, das erhältlich ist durch Umsetzung einer Mischung
10 von
a1) linearen Polysiloxanen der allgemeinen Formel (1)



15 und

- a2) verzweigten Polysiloxanen der allgemeinen Formel (2)



20 mit

- b) polyfunktionellen Isocyanaten,
wobei und R, T, Q, a, b, c, d, e, f und g die in Anspruch 1
angegebenen Bedeutungen aufweisen.